

Свойства и поведение под облучением карбидных, нитридных, фосфидных и других топливных композиций

Т. С. МЕНЬШИКОВА, Ф. Г. РЕШЕТНИКОВ, В. С. МУХИН, Г. А. РЫМАШЕВСКИЙ,
И. Г. ЛЕБЕДЕВ, А. Л. ЭПШТЕЙН

(Государственный комитет по использованию атомной энергии СССР)

В настоящее время большое внимание уделяется изучению карбидного горючего, которое по ряду свойств (более высокая теплопроводность, большая плотность по делящемуся элементу) превосходит окисное. Использование карбидного горючего может значительно улучшить такую важную характеристику быстрых реакторов, как время удвоения, что благоприятно отразится на экономике топливного цикла. С этой точки зрения интересными композициями являются также нитриды, фосфиды урана и плутония.

Опыт эксплуатации в СССР реактора БР-5 с карбидной зоной подтвердил реальную возможность использования карбидного горючего в быстрых реакторах. Вместе с тем исследования последних лет [1] показали, что карбидное горючее имеет и ряд недостатков: при высоких температурах (1500°C) набухает больше, чем окисное, и науглероживает оболочку. Следовательно, для того чтобы реализовать преимущества карбидного горючего, необходимо разработать соответствующую конструкцию твэла. Так, для снижения температуры сердечника целесообразно применять в зазоре «топливо — оболочка» подслои с хорошей теплопроводностью (например, Na). Однако применение натрия ухудшает совместимость с оболочкой, так как натрий переносит избыточный углерод и карбидизирует оболочку. Но имеются пути устранения или по крайней мере существенно уменьшения карбидизации оболочки. Это: 1) получение карбидов состава, близкого к стехиометрическому; 2) легирование карбидов элементами, легко образующими соединения с углеродом; 3) нанесение на сердечник защитных покрытий, а также некоторые другие способы защиты оболочки от карбидизации. Какой из этих путей окажется более действенным в условиях облучения — это является предметом многих исследований.

Довольно много работ (например, [1–8]) посвящено также изучению физико-механических, радиационных, термодинамических и других свойств тугоплавких соединений урана и плутония. Однако имеется необходимость в дополнительном изучении оптимальных методов изготовления изделий из тугоплавких соеди-

нений урана и плутония, в исследовании их свойств, изучении набухания, совместимости и газовыделения в условиях реакторного облучения. Рассмотрению этих вопросов посвящен настоящий доклад.

Получение тугоплавких соединений урана и плутония

Тугоплавкие (бескислородные) соединения урана и плутония могут быть получены различными способами. В частности, карбиды указанных металлов получают преимущественно по реакции взаимодействия окислов с углеродом. Второй возможный способ получения карбидов — газовая карбидизация соответствующих металлов. Несмотря на то что металлы дороже окислов, последний способ имеет ряд преимуществ. Низкие температуры процессов, простота аппаратного оформления в сочетании с возможностью значительной механизации и автоматизации операций получения сердечников твэлов делают этот метод привлекательным и заслуживающим обсуждения. В связи с этим было признано целесообразным дополнительно изучить методы получения монокарбида, а также мононитрида урана карбидизацией или нитрированием мелкодисперсного порошка урана или его гидрида соответственно пропаном или азотом.

Проведенные исследования показали, что, изменяя температуру и продолжительность процесса карбидизации, можно получать карбид урана заданного состава в широком диапазоне — от гипостехиометрического монокарбида до дикарбида. Этот метод позволяет, в частности, в крупном масштабе получать стехиометрический монокарбид урана в виде порошка крупностью 2–6 мкм и параметром решетки $a = 4,961 \text{ \AA}$. Содержание кислорода в нем составляет не более 0,05%.

Мононитрид урана получали взаимодействием дисперсных порошков урана или его гидрида с азотом при $450–700^{\circ}\text{C}$ с последующим разложением образующегося при этом полуторного нитрида в вакууме при $900–950^{\circ}\text{C}$ до мононитрида. Полученный мононитрид содержал 5,4–5,5% азота; параметр его решетки был равен $4,889 \text{ \AA}$; крупность порош-

ка монокрида составляла в среднем 15—30 мкм. При изготовлении сердечников из монокрида спекание проводилось в атмосфере азота при 1800—2000° С. Получение полукторного нитрида урана может быть осуществлено в виде непрерывного процесса.

Монокарбид плутония изготавливали гидрированием металлического плутония и последующей карбидизацией его углеродом при температуре 400—800° С. Твердый раствор монокарбидов урана и плутония получали смешиванием исходных порошков и дальнейшим спеканием при температуре 1200—1600° С. Высокая поверхностная активность получаемых порошков позволила упростить и автоматизировать изготовление сердечников твэлов в виде втулок и брикетов с регулируемой и высокой плотностью (93—96% от теоретической) с использованием пресс-автомата или многогнездных пресс-форм. Изготовление сердечников производилось смешением исходных порошков с одним процентом 1,5%-ного раствора парафина или олеиновой кислоты в бензине, прессованием при давлении 1,5—2 т/см² и спеканием в вакууме при 1600—1800° С в течение 3—4 ч. Полученные изделия с плотностью 93—95% от теоретической имели крупность зерна в среднем 30—50 мкм, кристаллы равноосные. При изготовлении сердечников для опытных твэлов БОР-60 и СМ-2 содержание кислорода в монокарбидных и монокридных сердечниках составляло соответственно 0,02—0,05 и 0,1%. Характерные микроструктуры соединений представлены на рис. 1, а и б. Сульфиды и фосфиды урана и плутония получают по этой же схеме, только углерод заменяется соответственно сероводородом и фосфином.

Для получения нитридов и карбидов урана и плутония и изготовления из них сердечников создана установка, состоящая из восьми последовательно соединенных металлических камер и дополнительного оборудования (аппаратов

с электропечами для получения исходных соединений, прессов, вакуумно-компрессионных электропечей для спекания, весов, пультов управления и т. д.). Общий вид этой установки представлен на рис. 2.

Свойства карбида, нитрида, сульфида и фосфида урана

Механические и теплофизические свойства.

Для уточнения отдельных, подчас разрозненных и противоречивых литературных данных было предпринято исследование при температурах преимущественно до 2000° С теплопроводности λ и электросопротивления ρ , теплоемкости C_p , давления паров урана P_U , прочности на сжатие σ_b , твердости H_b , модуля упругости E , коэффициента линейного расширения α UC, UN, U—C—N, US и UP.

Образцы были изготовлены металлокерамическим методом, их пористость составляла 5—10% (приводимые значения λ , ρ , E , C_p соответствуют беспористому состоянию); содержание неметаллических компонентов было близким к стехиометрическому (в структуре UP и US наблюдалось до 2—5 вес.% окисных включений).

Измерения прочности и других свойств проводились в вакууме; твердость определялась по вдавливанию сапфирового индентора при нагрузке 2 кг; модуль упругости определялся резонансным методом на образцах с отношением $l/d \geq 10$. Давление пара исследовалось интегральным вариантом метода Кнудсена. Теплопроводность при 20—1000° С рассчитывалась из результатов измерений температуропроводности и теплоемкости, для более высоких температур измерялась методом радиального теплового потока (одновременно проводилось определение ρ). Термическое расширение исследовалось на индукционном кварцевом dilatометре.

Погрешность в определении λ и P_U не выше 15%, модуля упругости—5%, термического расширения — 3%.

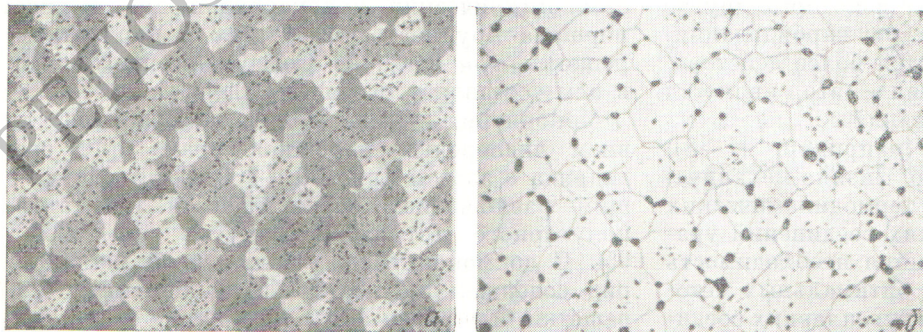
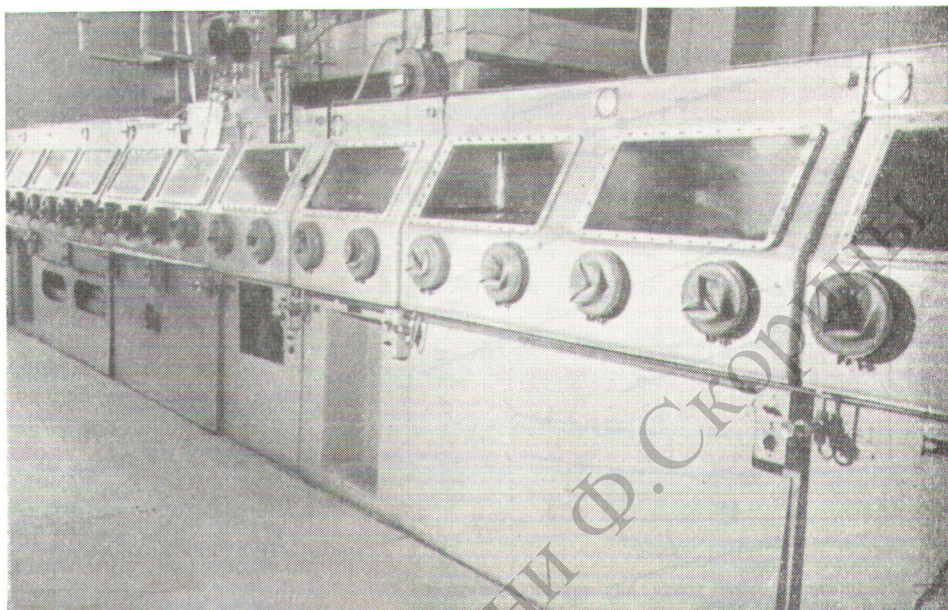


Рис. 1. Микроструктура изделий, полученных методом газовой карбидизации:
а — карбид урана; б — нитрид урана ($\times 200$).

Рис. 2. Общий вид установки для получения карбидов и нитридов урана.



На рис. 3—5 приведены температурные зависимости σ_b , E , H_v , $\bar{P}_i$, λ , ρ , C_p для карбида, нитрида, сульфида и фосфида урана, а на рис. 6 — концентрационное изменение свойств в системе UC — UN. Сравнение температурного изменения σ_b , H_v , E , а также деформации (см. рис. 3) приводит к выводу о том, что сульфид и в особенности фосфид значительно пластичнее карбидов и нитридов. Это проявляется как в отсутствии характерного для хрупких фаз некоторого повышения прочности с ростом температуры, так и в заметной деформации при $T > 1000^\circ\text{C}$. Трещины около отпечатков при измерении твердости у фосфидных образцов не наблюдались даже при комнатной температуре (у других соединений температура, при которой исчезали трещины, составляла 1000 — 1200°C). Обращает на себя внимание и довольно низкое значение модуля упругости у фосфидов урана, что в сочетании с отмеченной «пластичностью» обуславливает более высокую по сравнению с карбидом и нитридом урана термopочность. Наши результаты определения σ_b , E , H_v неплохо согласуются с литературными данными [9—11].

Наиболее низкое давление паров урана среди исследованных соединений наблюдается у кар-

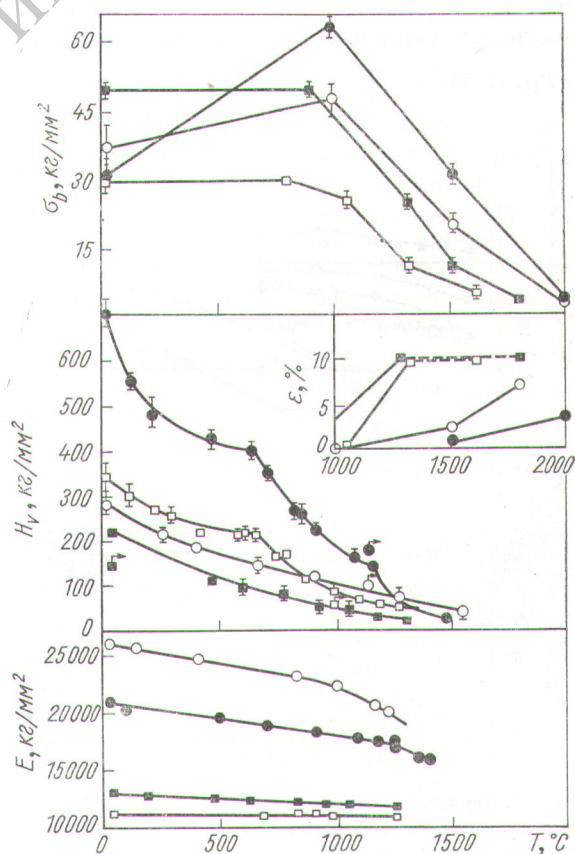


Рис. 3. Влияние температуры на σ_b , H_v , E и деформацию карбида (●), нитрида (○), сульфида (□) и фосфида урана (■). Стрелками отмечены температуры исчезновения трещин у отпечатков при измерении твердости.

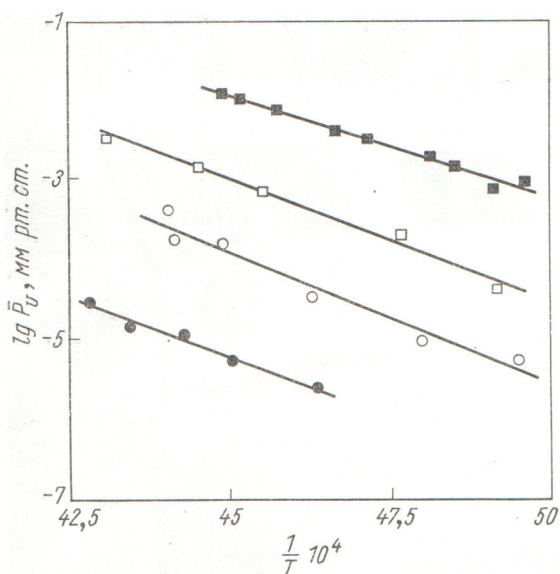


Рис. 4. Давление пара урана для карбида, нитрида, сульфида и фосфида урана.

Обозначения те же, что и на рис. 3.

бида, наиболее высокое — у фосфида (см. рис. 4). Выражения для температурной зависимости давления паров (мм рт. ст.) имеют вид:

$$\lg P_U = 7,56 - \frac{2,86 \cdot 10^4}{T}, \quad T = 2170 - 2470^\circ \text{K},$$

$$U(C_{0,99}N_{0,005}O_{0,005}),$$

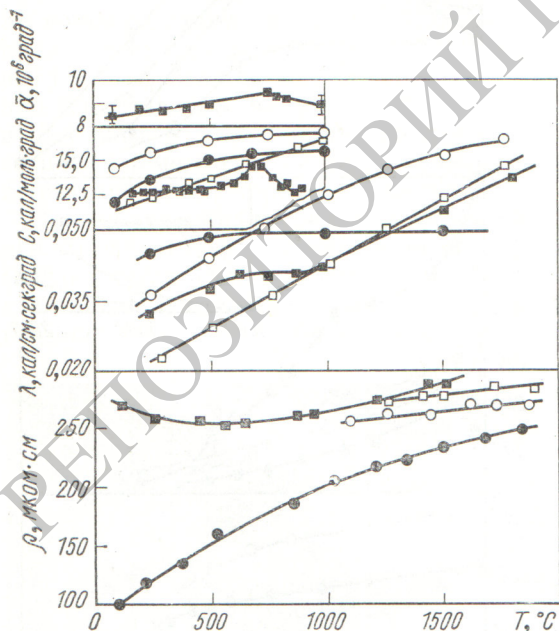
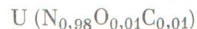


Рис. 5. Температурное изменение λ , q , C_p , $\bar{\alpha}$ карбида, нитрида, сульфида и фосфида урана.

Обозначения те же, что и на рис. 3.

$$\lg P_U = 8,43 - \frac{2,74 \cdot 10^4}{T}, \quad T = 1850 - 2300^\circ \text{K},$$



$$\lg P_U = 9,75 - \frac{2,84 \cdot 10^4}{T}, \quad T = 1940 - 2530^\circ \text{K}, \quad US^*,$$

$$\lg P_U = 11,34 - \frac{2,94 \cdot 10^4}{T}, \quad T = 1920 - 2230^\circ \text{K}, \quad UP^*.$$

Для фосфида и сульфида характерно конгруэнтное испарение; давление пара урана для карбида и нитрида существенно зависит от отклонений от стехиометрического состава. Применительно к карбиду урана эта зависимость на основе данных [6, 12] с использованием статистико-термодинамических представлений обсуждена в работе [6]. Показано, что давление паров уменьшается с повышением комплектности неметаллической подрешетки с учетом содержания всех элементов внедрения.

Наши данные для нитрида урана существенно ниже (на один—полтора порядка) результатов [6, 13], полученных на достехиометрических образцах. Результаты масс-спектрометрических исследований моносоединений урана [12, 14—16] хорошо согласуются с нашими данными. Электросопротивление, теплопроводность и теплоемкость с ростом температуры увеличиваются (см. рис. 5); для фосфида урана наблюдается аномальное изменение ρ в интервале температур до 500°C и немонокотное изменение λ и C_p в районе 700°C . Эти аномалии можно заметить и в данных работы [3], где λ и C_p были измерены до 700°C . Характерно также, что в этом интервале температур немонокотно меняется и коэффициент термо-э. д. с. остается постоянным ($\sim +50 \text{ мкВ}/^\circ \text{C}$) при $T = 20 - 1100^\circ \text{C}$. Судя по этим данным, фосфид урана претерпевает при $T \approx 700^\circ \text{C}$ превращение второго рода, природа которого, однако, должна быть дополнительно изучена.

Электросопротивление фосфида, нитрида, сульфида выше, чем у карбида; это связано с тем, что первые три соединения при низких температурах претерпевают магнитные превращения [17]. Судя по значению константы Холла ($R_{UP} = +55 \cdot 10^{-4}$, $R_{US} = +1,4 \cdot 10^{-4} \text{ см}^3/\kappa$) и коэффициента термо-э. д. с., эти соединения обладают дырочной проводимостью; их также относят к полуметаллическим. Уровень теплопроводности у них представляется достаточно высоким.

* Химический состав сульфида и фосфида (вес.%):
US — 11,8; 0,05 N; 0,1 C; 0,25 ($UO_2 + UOS$); 0,1 W;
UP — 11,7 P; 0,03 C; 0,7 O.

Для карбонитридов урана, образующих непрерывный ряд твердых растворов, свойства меняются в зависимости от концентрации довольно плавно (рис. 6); давление паров урана уменьшается при переходе от нитрида к карбиду [6]; в работе [18] на диаграмме плавкости отмечено наличие максимума вблизи состава $UC_{0,3}N_{0,7}$ ($T_{пл} \sim 2900^\circ C$).

Совместимость соединений урана и плутония с материалом оболочки. Исследование совместимости тугоплавких соединений урана и плутония с оболочкой в непосредственном контакте и через гелиевую и натриевую прослойку проводилось как в дореакторных, так и в реакторных условиях. При изучении использовались микроструктурный, рентгеноструктурный и химический анализы, а также проводилось измерение механических свойств оболочек. Методика испытаний описана в работе [19]. Условия и результаты дореакторных испытаний приведены в табл. 1.

Из таблицы видно, что карбид стехиометрического состава не взаимодействует с оболочкой при $800^\circ C$ ни через гелиевую, ни через натриевую прослойки. Карбид сверхстехиометрического состава не обнаруживает взаимодействия в случае гелиевого зазора, однако при наличии натриевого зазора наблюдается науглероживание оболочки. Так, при $800^\circ C$ за 4500 ч образуется зона взаимодействия ~ 100 мкм. Содержание углерода в стальной оболочке при этом повышается до 0,77 вес.%, что приводит к снижению пластичности на 70%. Характерная структура зоны взаимодействия приведена на рис. 7.

При изучении совместимости в непосредственном контакте наиболее реакционноспособным из исследованных соединений, естественно, оказался карбид урана. В этом случае наблюдалось как диффузионное проникновение урана на значительную глубину, так и выделение карбидных включений. Для нитрида и фосфида

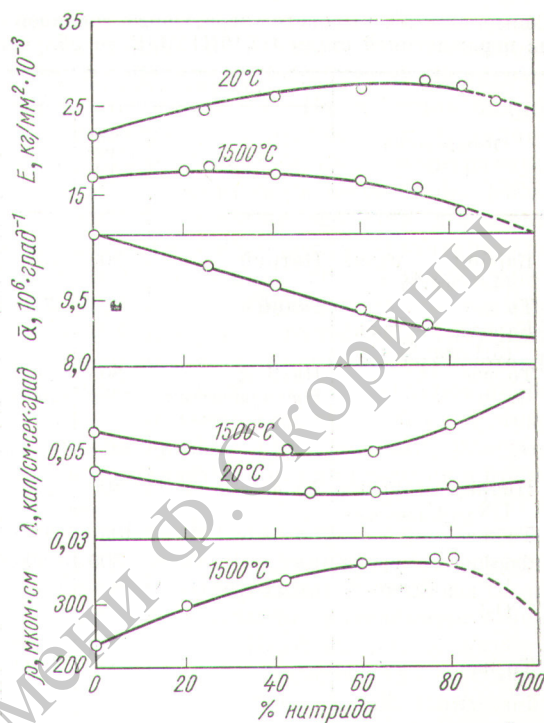


Рис. 6. Концентрационное изменение E , $\alpha_{20-1000}$, λ , q в системе $U-C-N$.

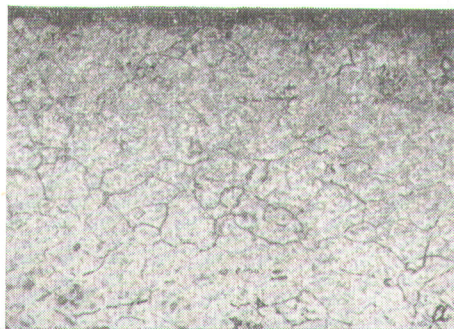
урана при $1000^\circ C$ отмечается очень слабое взаимодействие, однако при $1100^\circ C$ у фосфида образуется жидкая фаза за очень короткое время.

Поведение эквимольного карбонитрида урана аналогично поведению нитрида, очевидно, вследствие существенного снижения активности углерода.

Улучшение совместимости карбидов сверхстехиометрического состава может быть достигнуто и за счет легирования хромом или цирконием, причем увеличение содержания хрома в карбиде с 5 до 9 вес.% сказывается

Рис. 7. Микроструктура зоны взаимодействия карбида урана с оболочкой из стали ОХ16Н15МЗБ:

а — дореакторные испытания, $800^\circ C$, 450 ч, среда — натрий; б — испытания в реакторе, $550^\circ C$, 6500 ч, среда — гелий, оболочка деформирована в результате распухания топлива. Видны трещины в науглероженном слое.



Совместимость высокотемпературных соединений урана и плутония с оболочкой из нержавеющей стали ОХ16Н15МЗБ до облучения

Композиция	Условия испытаний			Результаты испытаний			
	Среда	Температура, °C	Время, ч	Содержание С в стали, % вес.	Глубина проникновения, мм		Изменение механических свойств стали
					углерода	урана	
Карбид урана (4,8 вес.% C)	Натрий	800	2500	0,06	Не наблюдалось	—	Не изменились
То же	Гелий	800	2000	0,06	То же	—	» »
Карбид урана (5,1 вес.% C)	»	800	2000	0,06	» »	—	» »
То же	Натрий	800	4500	0,77	100	—	ψ снизилось на 70%
» »	Непосредственный контакт	800	2500	Не определялось	—	200—250	δ, ψ снизилось на 30—40%
							σ _b , σ _{0,2} повысились на 30—40%
							Не изменились
Нитрид урана UN _{0,92} C _{0,09} O _{0,02}	То же	800	2500	То же	Не наблюдалось	5	» »
То же	» »	1000	2000	» »	То же	10	σ _b , σ _{0,2} повысились на 10—20%
То же	» »	800	500	» »	» »	10	ψ, δ снизилось на 10—20%
Фосфид урана UP _{1,01} (5 вес.% O ₂)	» »	1000	1000	» »	» »	15	σ _b , σ _{0,2} повысились на 10—20%
То же	» »	1000	1000	» »	» »	15	ψ, δ снизилось на 10—20%
							Не изменились
Фосфид урана UP _{1,01} (5 вес.% UO ₂)	» »	1100	2	» »	Образование жидкой фазы	—	» »
Карбонитрид урана UC _{0,45} N _{0,57} O _{0,02}	» »	800	2500	» »	Не наблюдалось	5	» »
То же	» »	1000	2000	» »	То же	10	» »
Карбид урана, легированный хромом (5 вес.%)	Натрий	800	2500	0,1	» »	—	ψ снизилось на 10%
Карбид урана, легированный хромом (9 вес.%)	»	800	4000	0,8	» »	—	Не изменились
Карбид урана, легированный цирконием U _{0,8} Zr _{0,7} Co _{0,98}	Непосредственный контакт	800	5000	Не определялось	» »	Не наблюдалось	» »
То же	То же	1000	1000	То же	» »	То же	» »
Карбид урана, покрытый хромом (5,1 вес.% C)	Натрий	800	4000	0,12	» »	» »	» »
Карбид урана, покрытый ZrC	Непосредственный контакт	800	2500	Не определялось	» »	» »	» »
То же	То же	1000	1000	То же	» »	» »	» »
То же	Натрий	800	2500	0,14	» »	10	ψ снизилось на 10—20%
Смешанный карбид урана и плутония (U _{0,8} Pu _{0,2}) C (5 об.% (UPu) ₂ C ₃)							

благоприятно на совместимости при наличии натриевой прослойки. Положительное влияние легирования цирконием проверялось при непосредственном контакте и было установлено отсутствие взаимодействия при 800° С за 5000 ч и при 1000° С за 1000 ч.

Предотвратить взаимодействие карбидов сверхстехиометрического состава со сталью можно также созданием диффузионных барьеров.

Опыты показали, что применение барьеров толщиной 20—50 мк из меди, хрома или ниобия, а также из ZrC или TiC позволяет практически предотвратить перенос углерода на оболочку через натрий и исключить взаимодействие при непосредственном контакте при 800 и даже 1000°С за 1000 ч. Указанное время не является предельным для карбидных барьеров, длительность эксплуатации которых, по оценочным данным, может быть по крайней мере на порядок больше.

Смешанный уран-плутониевый карбид, содержащий до 5 об. % полуторной фазы, показал лучшую совместимость через натрий, чем карбид урана с избыточным дикарбидом. По-видимому, полуторная фаза менее склонна отдавать углерод, чем фаза дикарида. Это отмечается и в других работах [20].

Исследовалась также совместимость ряда соединений урана и плутония с оболочкой в реакторных условиях. Результаты исследования приведены в табл. 2. Из таблицы видно, что величина слоя взаимодействия различна и зависит от состава топлива, температуры и среды между топливом и оболочкой. Установлено, что легирование карбида достехиометрического состава железом не предотвратило взаимодействия. Однако, если достехиометрический карбид взаимодействует со сталью с образованием интерметаллических соединений с высокой твердостью, то карбид, легированный железом, лишь незначительно науглероживает оболочку, что связано, по-видимому, с тем, что освобождающийся при делении углерод при низких температурах не связывается в прочный карбид.

Как и для результатов предреакторных испытаний совместимости, в условиях облучения взаимодействие сверхстехиометрического карбида с оболочкой гораздо интенсивнее, чем у стехиометрического. Карбонитрид и карбид урана под облучением взаимодействуют с оболочкой примерно одинаково. Слой взаимодействия имеет повышенную твердость и при деформации оболочки ~1 % в нем наблюдаются микротрещины (см. рис. 7, б). Натрий, являясь

Результаты взаимодействия карбидного топлива с оболочкой из стали X16H15M3B после облучения в реакторах БР-5 и СМ-2

Таблица 2

Композиция	Условия испытаний				Глубина проникновения, мкм	Микротвердость слоя взаимодействия, кг/мм ²	Характер взаимодействия
	Среда в зазоре	Температура, °C		Выгорание, % (время, ч)			
		средняя	максимальная				
Карбид урана (4,7 вес. % C)*	Гелий	570	660	4,5 (6 500)	250	1300	Образование жидкой фазы Науглероживание
Карбид урана, легированный железом (4,4 вес. % C; 2,4 вес. % Fe)	»	435	520	3,8 (6 500)	70	300—500	
Карбид урана* (5,0—5,4 вес. % C)	»	500	570	4,4 (29 300)	40	300—500	»
Карбид урана (5,1 вес. % C)	»	550	690	5,0 (6 500)	140	300—500	»
Карбид урана (4,9 вес. % C)	»	640	740	6,3 (6 500)	100	300—500	»
Карбонитрид урана (1,6 вес. % C; 3,3 вес. % N)	»	520	600	4,9 (6 500)	100	300—500	Выделение по границам зерен Науглероживание
Карбид урана (5,1 вес. % C)	Натрий	495	570	3,9 (6 500)	400	270	
Карбид урана, покрытый хромом (5,1 вес. % C)	»	460	540	3,9 (6 500)	—	290	Отсутствие взаимодействия

* Образцы облучены в реакторе БР-5.

* Образцы облучены в реакторе БР-5.

переносчиком углерода, ускоряет взаимодействие.

Структура оболочки изменяется по всей толщине (400 мкм), однако микротвердость изменилась незначительно, и оболочка имела запас пластичности.

В случае заполнения зазора гелием при той же температуре зона взаимодействия не превышала 40 мкм.

Показано, что покрытие монокарбида урана сверхстехиометрического состава слоем хрома толщиной 25 мкм предохраняет оболочку от науглероживания при облучении даже в случае заполнения зазора натрием. Защитный слой хромом сохранился.

Анализ результатов, приведенных в табл. 1 и 2, показывает, что характер взаимодействия под облучением остается в основном тем же самым, что и в обычных условиях. Однако скорость взаимодействия увеличивается, и заметное науглероживание оболочки наблюдается при 550—600° С, т. е. на 200—250° С ниже, чем в случае предреакторных испытаний.

Поведение под облучением

Облучение высокотемпературных соединений урана и плутония проводится в экспериментальных сборках теплового реактора СМ-2, а также в быстром реакторе БР-5.

Конструкция твэлов с карбидным горючим была описана нами ранее [19]. Оболочки твэлов изготавливались из нержавеющей стали ОХ16Н15МЗБ с толщиной стенки 0,3—0,4 мм. Плотность топлива составляла 90—93% от теоретической. Пористость, заложенная в конструкцию твэла, находилась в пределах 20% и состояла из пор самих таблеток и диаметрального зазора «оболочка — топливо», величина которого колебалась от 0,18 до 0,4 мм. Зазор заполнялся сплавом Na — К или гелием.

Необходимая температура на оболочке твэла создавалась термическим сопротивлением зазора между твэлом и наружным чехлом опытной ампулы. Для измерения температур на оболочке твэла в некоторые ампулы были введены хромель-алюмелевые микротермопары диаметром 0,2 мм. Термопары устанавливались в трех точках по высоте активной части твэла и нормально проработали более 1,5 лет. Термометрические измерения показали, что расчетные температуры были близки к фактическим. Образцы облучались при линейной мощности 300—600 Вт/см до выгорания 3,5—6,3% тяжелых атомов. Характеристика некоторых образцов и условия облучения приведены в табл. 3. Все твэлы после облучения при указанных условиях сохранили герметичность. Наибольшее увеличение диаметра оболочки в твэлах с максимальным выгоранием составило около 1%. Исследования показали, что средняя скорость распухания карбидного топлива (распухание, отнесенное к выгоранию, среднему по сечению) сильно зависит от температуры топлива (рис. 8). При температуре топлива 700—800° С имеет место в основном «твердое» распухание. Скорость распухания при этом составляет 1% на 1% выгорания. При температуре 1000—1100° С значительный вклад в распухание дают мелкие пузыри размером менее 0,5 мкм (рис. 9). При температуре 1400—1500° С образуются газовые пузыри и полости (рис. 10), а скорость распухания составляет 3—4% на 1% выгорания. Количество и размеры пузырей и полостей увеличиваются от периферии к центру. В исходном состоянии пор мало и они распределены равномерно по телу и границам зерна. После облучения они располагаются преимущественно по границам зерен. Крупных пор больше у более «горячих» границ, что вызвано их миграцией под действием градиента температур. Включения дикар-

Условия и результаты облучения монокарбида урана в реакторах БР-5 и СМ-2

Таблица 3

Порядковый номер	Содержание углерода в УС, вес. %	Максимальное выгорание, % тяжелых атомов	Температура в центре топлива (начальная), °С	Температура оболочки (расчетная), °С	Распухание на 1% выгорания	Газовыделение, %
1	5,3	0,8	1030	570	1,2	2
2	5,3	2,1	1030	570	1,2	2
3	5,3	3,0	1030	570	1,2	2
4	5,1	3,5	980	500	1,2	—
5	4,8—5,2	4,2	1250	530	2,5	7
6	4,9	6,3	1650	640	3,5	7

Примечание. № 1, 2, 3, 5—облучение в реакторе БР-5, № 4, 6—в реакторе СМ-2.

бида урана исчезают в процессе облучения. Значительное распухание карбидного топлива по сравнению с окисным вызвано способностью карбидного топлива удерживать газ в решетке, что, по-видимому, связано с различной диффузионной подвижностью газовых осколков в двуокиси и карбиде урана. Максимальное газовыделение из карбидного топлива в исследованных образцах составило 20%. Имеются сведения [1], что газовыделение при выгорании 10% составляет примерно 50%.

Рентгенографический анализ показал, что дифракционные максимумы сохраняются после облучения во всех исследованных образцах, период решетки монокарбида урана уменьшается. Наибольшее уменьшение периода решетки составило 0,16%. Знание скорости распухания позволяет оценить величину пористости, которая необходима для обеспечения нормальной работы твэла. Введение в твэл натриевой прослойки между топливом и оболочкой понижает температуру топлива, что, по-видимому, позволит получить выгорание 10% при высоких тепловых нагрузках. Более трудной задачей является достижение такого выгорания в твэлах с газовой прослойкой между топливом и оболочкой. По данным наших экспериментов, такие твэлы работоспособны до выгорания 6%, однако оболочка имела деформацию, близкую к критической. Достижение более высокого выгорания возможно, по-видимому, за счет уменьшения эффективной плотности топлива, а также варьирования характера распределения исходной пористости.

Эти и некоторые другие вопросы, от решения которых зависит использование перспективных видов высокотемпературного уран-плутоние-

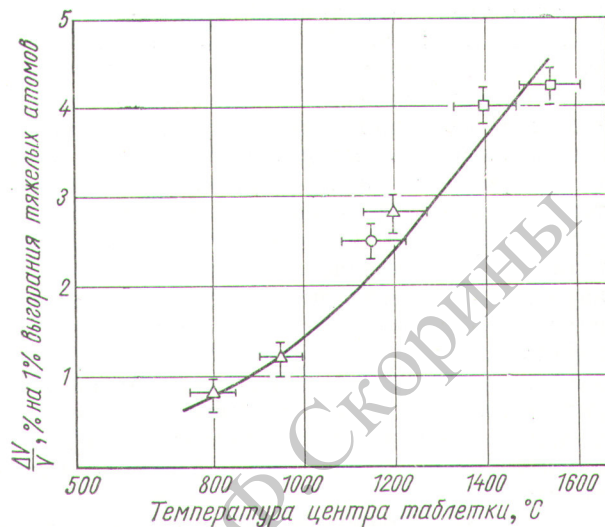


Рис. 8. Зависимость скорости распухания карбида урана от температуры в центре таблетки. Выгорание 3,5–6,3% тяжелых атомов:

Δ — свободное распухание; □ — распухание в условиях сдерживания оболочкой.

вого горючего, включены в программу дальнейшего исследования на реакторе BOR-60. С этой целью были изготовлены четыре пакета, состоящие из 76 твэлов с карбидным сердечником. Опытные пакеты будут облучены до выгорания 3; 5; 7 и 10 вес.%. Будет подробно изучено влияние различных технологических схем изготовления сердечников из карбида урана и состава топлива на стойкость под облучением; проверен ряд конструктивных решений; изучена совместимость сердечников из карбида урана с нержавеющей сталью в среде гелия и натрия. Возможность исполь-

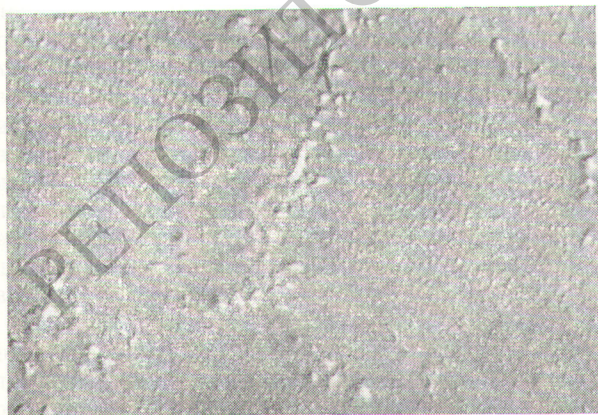


Рис. 9. Микроструктура карбида урана после облучения до выгорания 4,4% при температуре 1000°С (×7500).

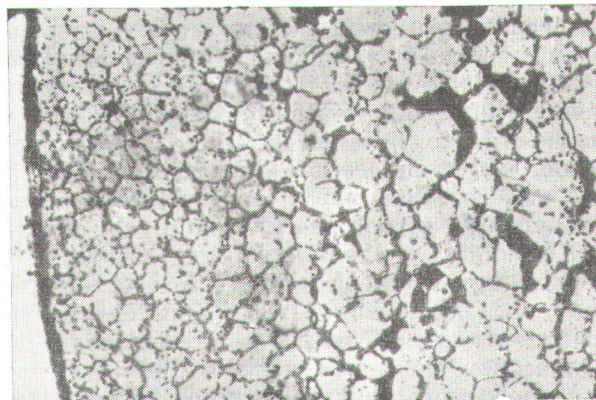


Рис. 10. Микроструктура сердечника из карбида урана. Выгорание 6,3%, начальная температура в центре брикета ~1600°С (×200).

зования твэлов с натриевой прослойкой весьма заманчива. Наиболее полно преимущества карбидного топлива можно реализовать в твэлах с натриевой прослойкой, которая вследствие высокой теплопроводности позволяет снимать высокие линейные мощности (1000—1300 *вт/см*) при диаметре твэла 10—12 *мм*. Более высокие тепловые нагрузки создают недопустимо большие термические напряжения в оболочке. При гелиевом подслое наиболее полно преимущества карбидного топлива реализуются при диаметрах твэла 6—7 *мм*. Так как применение в реакторах твэлов больших диаметров снижает удельные нагрузки и на первом этапе развития быстрых реакторов стоимость плутония высока, по-видимому, в первых загрузках более широкое применение найдут твэлы с гелиевым подслоем.

В составе экспериментальных пакетов исследуются оба варианта конструкции твэлов: а) твэлы с сердечником из карбида урана в среде гелия; б) твэлы с сердечником из карбида урана в среде натрия. Будет также изучено поведение твэлов с сердечниками из нитридов, сульфидов и других соединений урана и плутония.

Заключение

1. Изучены основные закономерности в температурном интервале 20—2000° С ряда физических и механических свойств (теплопроводности, электросопротивления, теплоемкости, коэффициента линейного расширения, твердости, модуля упругости и др.) карбида, нитрида, карбонитрида, сульфида и фосфида урана.

2. Наряду с общепринятыми способами получения тугоплавких соединений урана и плутония из двуокиси проработан метод газовой гетерогенной карбидизации и нитрирования исходных материалов, привлекательный с точки зрения простоты аппаратного оформления, снижения температуры процессов, возможности механизации и автоматизации операций получения сердечников твэлов.

3. Исследована совместимость тугоплавких соединений урана и плутония со сталью ОХ16Н15МЗБ в условиях дореакторных и реакторных испытаний. Установлено, что характер взаимодействия одинаков, однако температура начала взаимодействия УС с оболочкой под облучением снижается на 200—250° С. В случае карбидного топлива взаимодействие выражается карбидизацией оболочки на глубину

100—400 *мк*, что, однако, не приводит к разрушению твэлов. Показано, что совместимость может быть улучшена нанесением на сердечник защитных покрытий (хром, титан, цирконий и др.).

4. Твэлы с карбидным и карбонитридным топливом были облучены без разрушения до выгорания 6,3% тяжелых атомов при линейной мощности 600 *вт/см* и температуре в центре до 1600° С. Установлена зависимость распухания карбидного топлива от температуры. Показано, что газовыделение из карбидного топлива при выгорании до 6,3% достигает 20%.

Авторы выражают глубокую благодарность Р. А. Андриевскому, В. И. Кузьмину, Г. В. Калашник, А. С. Панову, А. С. Пискуну, Б. Д. Рогозину, любезно предоставившим материалы, вошедшие в настоящий доклад.

ЛИТЕРАТУРА

1. A. Strasser, J. Kittel. Paper presented at AIME Nuclear metallurgy Symposium on Plutonium Fuels Technology. Phoenix, 1967.
2. Р. Б. Котельников и др. Высокотемпературное ядерное горючее. М., Атомиздат, 1969.
3. J. Moser, O. Kruger. J. Appl. Phys., 38, 3215 (1967).
4. M. Allbutt, K. Deel. J. Nucl. Mater., 24, 1 (1967).
5. J. Baskin. J. Amer. Ceram. Soc., 49, 541 (1966).
6. Р. А. Андриевский и др. «Атомная энергия», 26, 494 (1969).
7. V. Storhok, V. Martin, J. Gates. High-Temperature Nuclear Fuels, 42, 254 (1968).
8. T. Paskos et al. Third Intern. Conf. Peaceful Uses of Atomic Energy. Unit. Nat. Vol. II, 1965, p. 472.
9. D. Brown, J. Stobo. Trans. Brit. Ceram. Soc., 62, 177 (1963).
10. A. Hall. AERE-R-5650, 1967.
11. R. Beals, J. Handwerk, G. Dragel. High-Temperature Technology. London, 1969, p. 265.
12. E. Storms. Thermodynamics. Vol. I. Vienna, 1966, p. 309.
13. C. Alexander, J. Ogden, W. Pardue. J. Nucl. Mater., 31, 13 (1969).
14. R. Gingerich. Chem. Phys., 51, 4433 (1969).
15. R. Gingerich, P. Lee. Ibid., 40, 3520 (1964).
16. E. Cater, E. Raugh, P. Thorn. Ibid., 44, 306 (1966).
17. J. Crunzweig-Gomossar, M. Kuzmitcz, F. Friedman. Phys. Rev., 173, 562 (1968).
18. R. Benz. J. Nucl. Mater., 31, 93 (1969).
19. I. S. Golovnin et al. In: «Fast Reactor Irradiation Testing» Proc. Intern. Conf. Held at Thurso (Scotland, 1969), 1969.
20. R. Pascard. Intern. Symp. on Plutonium Fuels Technology, Nuclear Metallurgy. Vol. 13, 1968.